

DERWENT-ACC-NO: 2000-283292
DERWENT-WEEK: 200219
COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Mechanical seal, for general purpose pumps,
comprises carbon base,
silicon carbide layer, and silicon carbide, boron carbide
coating

INVENTOR: FUKUDA, T; MATSUMOTO, T ; OZAKI, S ; TAKIMOTO, Y

PATENT-ASSIGNEE: TOYO TANSO CO LTD[TOTAN], TOYO TANSO
CO [TOTAN]

PRIORITY-DATA: 1998JP-0276664 (September 11, 1998)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
PAGES	MAIN-IPC	
WO 200015982	March 23, 2000	J
020	F16J 015/34	
A1	September 10, 2001	N/A
000	F16J 015/34	
KR 2001086364	March 31, 2000	N/A
007	F16J 015/34	
A	June 27, 2001	E
.000	F16J 015/34	
JP 2000088111		
A		
EP 1111278	A1	

DESIGNATED-STATES: KR US AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR
IE IT LU MC NL PT SE A
T BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU MC NL PT SE

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO
APPL-DATE		
WO	N/A	1999WO-JP04965
	September 13, 1999	
200015982A1	N/A	2001KR-0702901
	March 6, 2001	
KR2001086364A	N/A	1998JP-0276664
	September 11, 1998	

JP2000088111A	N/A	1999EP-0943292
	September 13, 1999	
EP 1111278A1	N/A	1999WO-JP04965
	September 13, 1999	
EP 1111278A1	Based on	WO 200015982
	N/A	
EP 1111278A1		

INT-CL (IPC): C04B035/52; C04B041/87 ; F16J015/34

ABSTRACTED-PUB-NO: WO 200015982A

BASIC-ABSTRACT: NOVELTY - Mechanical seal member comprises carbon base material and carbon silicon carbide composite which extends from the entire surface of the carbon base towards the interior. The coating film is formed on the surface which consists of silicon carbide and boron carbide as main components.

USE - The mechanical seal is used for small size general purpose pumps.

ADVANTAGE - The seal can be used economically and easily in emergencies. The seal can be used under condition of low rotation speed and high pressure. A seal rubbing preventive effect is obtained. Costs are reduced.

CHOSEN-DRAWING: Dwg. 0/4

TITLE-TERMS:

MECHANICAL SEAL GENERAL PURPOSE PUMP COMPRISE CARBON BASE SILICON CARBIDE LAYER SILICON CARBIDE BORON CARBIDE COATING

DERWENT-CLASS: A88 L02 Q65

CPI-CODES: A12-H; A12-H08; L02-H02A; L02-H04;

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 1247U

ENHANCED-POLYMER-INDEXING:

Polymer Index [1.1]
018 ; P0000 ; S9999 S1434
Polymer Index [1.2]
018 ; ND01 ; Q9999 Q9018 ; Q9999 Q7921 Q7885 ; N9999

N6224 N6177
; N9999 N7147 N7034 N7023

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C2000-085490

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N2000-213223



(51) 国際特許分類7 F16J 15/34	A1	(11) 国際公開番号 WO00/15982 (43) 国際公開日 2000年3月23日(23.03.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP99/04965		(81) 指定国 KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)
(22) 国際出願日 1999年9月13日(13.09.99)		添付公開書類 国際調査報告書
(30) 優先権データ 特願平10/276664 1998年9月11日(11.09.98)	JP	
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 東洋炭素株式会社(TOYO TANSO CO., LTD.)[JP/JP] 〒555-0011 大阪府大阪市西淀川区竹島5丁目7番12号 Osaka, (JP)		
(72) 発明者 ; および (75) 発明者／出願人 (米国についてのみ) 松本 喬(MATSUMOTO, Takashi)[JP/JP] 福田利臣(FUKUDA, Toshiomi)[JP/JP] 尾崎伸一(OZAKI, Shin-ichi)[JP/JP] 瀧本裕治(TAKIMOTO, Yuji)[JP/JP] 〒769-1614 香川県三豊郡大野原町萩原850 東洋炭素株式会社内 Kagawa, (JP)		
(74) 代理人 弁理士 梶 良之(KAJI, Yoshiyuki) 〒532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目14番22号 リクルート新大阪ビル Osaka, (JP)		

(54)Title: MECHANICAL SEAL MEMBER

(54)発明の名称 メカニカルシール部材

(57) Abstract

A mechanical seal member formed by applying slurry, in which boron carbide powder and silicon powder are mixed and dispersed, onto the entire surface of a carbon material having an average pore radius of at least 1.0 μ m and formed into a hollow tubular or cylindrical product shape and firing the resultant product to form a carbon-silicon carbide composite material extending from the entire surface toward the interior of the product shape and a thin coating, 3 to 30 μ m thick, consisting mainly of silicon carbide and boron carbide and spread on the surface of the composite material. The carbon-silicon carbide composite material is formed uniformly from the surface to the center, because the member is small in size with a section, parallel to the center axis, of up to 7 x 7 mm. A silicification ratio on the surface of the composite material is 30 to 55 % in area ratio. A carbon base material density is at least 1.7 g/cm³ and after silicification 2.0 to 2.5 g/cm³. A mechanical seal member may be produced by impregnating metal or resin into pores of this carbon-silicon carbide composite material.

(57)要約

本発明に係るメカニカルシール部材は、平均細孔半径が1.0 μm以上である中空円筒状または円筒状の製品形状に加工された炭素材の全面に、炭化ホウ素粉末とケイ素粉末を混合分散したスラリーを塗布し、焼成することにより、前記製品形状の表面の全面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材を形成させ、その表面に炭化ケイ素と炭化ホウ素を主成分とする厚み3~30 μmの薄い被覆膜が形成させて、メカニカルシール材としたものである。また、中心軸に平行な断面が7×7 mm以下の中型であるため、炭素-炭化ケイ素複合材が表面から中心部にいたりほぼ均一に形成されている。そして、その炭素-炭化ケイ素複合材の表面のケイ化率が面積比率で30~55%となっている。また、使用する炭素基材密度は1.7 g/cm³以上であり、ケイ化後の密度が2.0~2.5 g/cm³である。また、この炭素-炭化ケイ素複合材の気孔に金属又は樹脂を含浸させてメカニカルシール材とすることもできる。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE アラブ首長国連邦	DM ドミニカ	KZ カザフスタン	RJ ロシア
AL アルバニア	EE エストニア	LC セントルシア	SD スーダン
AM アルメニア	ES スペイン	LI リヒテンシュタイン	SE スウェーデン
AT オーストリア	FI フィンランド	LK スリ・ランカ	SG シンガポール
AU オーストラリア	FR フランス	LR リベリア	SI スロヴェニア
AZ アゼルバイジャン	GA ガボン	LS レント	SK スロヴァキア
BA ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB 英国	LT リトアニア	SL シエラ・レオネ
BB バルバドス	GD グレナダ	LU ルクセンブルグ	SN セネガル
BE ベルギー	GE グルジア	LV ラトヴィア	SZ スウェーデン
BF ブルガリア・ファン	GH ガーナ	MA モロッコ	TD チャード
BG ブルガリア	GM ガンビア	MC モナコ	TG トーゴー
BJ ベナン	GN ギニア	MD モルドヴァ	TJ タジキスタン
BR ブラジル	GW ギニア・ビサオ	MG マダガスカル	TZ タンザニア
BY ベラルーシ	GR ギリシャ	MK マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TM トルクメニスタン
CA カナダ	HR クロアチア	共和国	TR トルコ
CF 中央アフリカ	HU ハンガリー	ML マリ	TT トリニダッド・トバゴ
CG コンゴ	ID インドネシア	MN モンゴル	UA ウクライナ
CH スイス	IE アイルランド	MR モーリタニア	UG ウガンダ
CI コートジボアール	IL イスラエル	MW マラウイ	US 米国
CM カメルーン	IN インド	MX メキシコ	UZ ウズベキスタン
CN 中国	IS アイスランド	NE ニジェール	VN ヴィエトナム
CR コスタ・リカ	IT イタリア	NL オランダ	YU ユーゴースラビア
CU キューバ	JP 日本	NO ノルウェー	ZA 南アフリカ共和国
CY キプロス	KE ケニア	NZ ニュージーランド	ZW ジンバブエ
CZ チェコ	KG キルギスタン	PL ポーランド	
DE ドイツ	KP 北朝鮮	PT ポルトガル	
DK デンマーク	KR 韓国	RO ルーマニア	

明細書

メカニカルシール部材

技術分野

本発明は、耐摩耗性及び不浸透性に優れ、長時間安定して摺動封止効果を保持することを可能とする、冷蔵庫用、自動車ウォーターポンプ等の汎用ポンプ用のメカニカルシール部材に関する。

背景技術

近年、冷蔵庫用、自動車ウォーターポンプ等の汎用ポンプ用の量産型小型メカニカルシール部材として黒鉛質炭素材が広く使用されている一方で、さらなる耐スラリー性、高周速、長寿命、耐ブリスター性等の特性向上が望まれている。

そこで、これらの要求に則した材料として、炭素基材の摺動面を含む表面層にシリコンペーストを塗布し、炭化ケイ素質に転化しメカニカルシール部材とする技術（特開平10-53480号公報）が開示されている。

しかしながら、シリコンは炭素に対して、気孔半径が1μm以下であると、内部への浸透が困難である。そのため、毛細管現象によって浸透していくにも限度があり、深くても表面から1～2mm程度しか浸透せず、熱処理後形成される炭素一炭化ケイ素複合層の厚みも2mm程度が限度であった。さらに、内部への浸透も均一でなく、形成される炭素一炭化ケイ素複合層の厚みにバラツキが生じるという問題があった。

このため、形成される複合層の厚みが部分的に異なるために、炭素基材との熱膨張係数の違いなどから、製品が歪むこともあり、炭素一炭化

ケイ素複合層形成後、製品寸法への機械加工が必要であった。

発明の要約

本発明は製品全面に、表面から深く、略均一に炭素-炭化ケイ素複合層を形成させ、摺動封止特性、耐ブリスター特性等に優れ、摺動面の最終研磨加工を除き、製品寸法への機械加工が不要となる小型汎用ポンプ用のメカニカルシール部材を提供することを目的とする。

前記課題を解決するために、本発明に係るメカニカルシール部材は、炭化ホウ素を加えることにより、何らかの触媒作用が付与され、全面を炭素-炭化ケイ素複合層に転化したものである。すなわち、平均細孔半径が $1.0 \mu\text{m}$ 以上である中空円筒状または円筒状の炭素材を機械加工で切り出して製品形状に加工された炭素材の全面に、炭化ホウ素粉末とケイ素粉末を混合分散したスラリーを塗布し、焼成することにより、前記製品形状の表面の全面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材を形成させ、その表面に炭化ケイ素と炭化ホウ素を主成分とする厚み $3 \sim 30 \mu\text{m}$ の薄い被覆膜が形成させて、メカニカルシール材としたものである。また、中心軸に平行な断面が $7 \times 7 \text{ mm}$ 以下の小型であるため、表面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材が深さ方向にほぼ均一に形成され、前記断面のほぼ中心部まで炭素-炭化ケイ素複合材となっている。そして、その炭素-炭化ケイ素複合材の表面のケイ化率が面積比率で $30 \sim 55\%$ でとなっている。また、使用する炭素基材密度は 1.7 g/cm^3 以上であり、ケイ化後の密度が $2.0 \sim 2.5 \text{ g/cm}^3$ である。また、この炭素-炭化ケイ素複合材の気孔に金属又は樹脂を含浸させてメカニカルシール材とすることもできる。

図面の簡単な説明

図1は、炭化ホウ素を添加して作製した炭素-炭化ケイ素複合材によるメカニカルシール部材の断面の写真を示す図である。

図2は、シリコンのみを使用して作製した炭素-炭化ケイ素複合材によるメカニカルシール部材の断面の写真を示す図である。

図3は、摺動面表面の構成成分の概略比率を示す表である。

図4は、耐摩耗試験の結果をまとめた表である。

発明の開示

炭化ホウ素を加えることで、何らかの触媒作用が付与され、シリコンが炭素基材の内部深くまで浸透していき、表面から内部深くに至る。そのため、汎用形小型メカニカルシール部材程度の断面積であれば、十分に内部まで、略均一に炭素-炭化ケイ素複合材が形成できる。炭化ケイ素が形成されている部分の硬度、即ち、耐摩耗度は炭素基材に比較すると高くなり、炭化ケイ素部分が僅かではあるが、凸状となり、摺動面粗さが大きくなり、摺動時に密封対象流体を巻き込み流体潤滑状態を維持する。また、凸状であり面積比率が30～55%の耐摩耗度の高い炭化ケイ素が相手材と密着し、封止特性を維持する事が可能であり、従来の黒鉛製のメカニカルシール材の使用されていた条件下全てでの使用が可能となる。

また、表面から内部に至る前記炭化ケイ素化率が略均一であるため、最終形状に加工後、炭化ケイ素化しても全面に炭化ケイ素が形成されるため、歪むことなく、寸法、形状が確保される。また、機械的強度も向上する。元々、密度が1.7 g/cm³以上の一般的に高密度、高強度炭素材と呼ばれる炭素基材を用いており、これによりメカニカルシール部材として十分な強度となる。

ケイ化処理後、表面には厚さ3～20 μmの硬質な被覆膜が残るが、

これは容易に取り除くことが可能である。また、3～20 μm と非常に薄いため、製品寸法に影響がほとんど無く、そのため、特に取り除く必要もない。また、表面にこの炭化ケイ素、炭化ホウ素を主成分とする薄膜が形成された状態のままであるということは、すなわち、ケイ化処理後、最終製品寸法への機械加工が不要であるということにもなる。このことから、炭化ケイ素化処理を行なう前に、あらかじめ、炭素基材の段階で、所定製品寸法形状に全自動で加工する。これは従来の黒鉛質炭素材のメカニカルシール材の加工と同様であり、NC旋盤等の24時間操業が可能な全自動の工作機械を使用することができるため、従来のCV法等による炭素-炭化ケイ素複合材に比較すると機械加工に要する時間及びコストが大幅に低減できる。ここでいう、最終機械加工とは、摺動面の鏡面研磨加工を除いた機械加工のことである。

また、金属若しくは樹脂を含浸する事により、不浸透特性をより一層確実なものとし、高圧下、低粘性またガス化しやすい流体の場合にもメカニカルシール部材としての適用が可能となる。

水銀圧入法によって求められる平均細孔半径は1.0 μm 以上好ましくは2.0 μm 以下のときに、30～55%の所定の炭化ケイ素化率が形成できる。このケイ素化される面は、この平均細孔半径に影響を受けるとともに、炭素基材の表面の細孔分布、すなわち炭素基材の密度にも影響を受けることから、炭素基材の密度は少なくとも、1.7 g/cm³以上であることが望まれる。更には、平均細孔径半径が1.0 μm 以下の場合、金属シリコンが内部にまで浸透しきれず、30%～55%という所定の炭化ケイ素化率を形成させることができなくなる。また、ケイ化処理後の密度が2.0～2.5 g/cm³の範囲、特に好ましくは2.1 g/cm³以上であることによって、内部の炭化ケイ素化率が30～55%であることが確認できる。

本発明におけるメカニカルシール部材は、まず、炭素基材をメカニカルシールの最終形状に加工する。加工には従来の量産型炭素質メカニカルシール材と同様のNC旋盤等の全自動工作機械により加工を行い、炭化ケイ素層の基となるスラリーを全面に塗布する。該スラリーは、平均粒径が約30～50μmのケイ素粉末と平均粒径が約4～20μmの炭化ホウ素粉末と樹脂とを混合分散して作製する。使用する樹脂は、一般に造膜性が高く、かつ残炭率が低い樹脂を使用し、例えばポリアミドイミド、ポリビニルアルコール、ポリアミド樹脂の内より選ばれたもののが特に好ましい。中でもポリアミドイミドが更に望ましく、ジメチルアセトアミド、ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキサイド、Nメチル-2ピロリドン等の溶媒に溶解させて使用する。

ケイ素粉末と炭化ホウ素粉末を樹脂で混合する場合、ケイ素粉末95～50重量%に対して炭化ホウ素粉末が5～50重量%が望ましい。さらにいえば、ケイ素粉末80重量%に対して炭化ホウ素粉末20重量%が好ましい。炭化ホウ素粉末が5重量%未満では、炭化ホウ素粉末の混合による効果が少ないからである。具体的には、高温下の真空炉内で処理した場合、溶融Siが黒鉛の気孔中に完全には浸透せず、冷却後黒鉛の表面に金属Siとなって固着した状態で残ってしまい、しかもこの固着物は取り除くことが非常に困難となるからである。一方、炭化ホウ素粉末を少なくとも5重量%以上含有させた場合は、触媒としての効果を発揮する。すなわち、シリコンと炭素の反応が促進され、炭化ケイ素化が進み、シリコンとの濡れ性が改善され、シリコンが炭素の気孔中に深くまで浸透し、炭素との反応が進み炭化ケイ素化され、炭化ケイ素層が形成されると推測される。即ち、炭化ホウ素が何らかの触媒作用を付与することにより、シリコンと炭素の反応が促進されたものであり、炭化ホウ素粉末を少なくとも5重量%以上含有させておくことで、初めてか

かる機能を有効に発揮させ、表面から内部にかけて均一に炭化ケイ素層を形成することが可能となる。

上記のように調製されたスラリー中に小型メカニカルシール用に加工した炭素基材を浸すか、または、その全面に該スラリーを塗布する。この後約300°Cで2時間乾燥することにより、溶媒は揮散し、樹脂は完全に硬化する。その後、10 Torr以下の不活性ガス雰囲気中で高温熱処理する。昇温速度は約400°C/時間とし、約1550~1600°Cに達した後30分間保持する。加熱手段は特に限定されるものではなく、適当な手段で行えばよい。この操作によって、ケイ素成分は溶融し、樹脂の炭化層を通って炭素基材の細孔を塞ぐ様に表面から2mm以上の深さまで侵入し、炭素と反応して炭化ケイ素化する。そのため、細孔中に炭化ケイ素が形成され、炭素基材の細孔は、炭化ケイ素によって塞がれたような状態となり、炭素基材の30~55%がケイ化され、ガス、液体等の流体の不浸透性が向上する。

このあと、表面に残留する炭化ホウ素、炭化ケイ素、金属シリコン等を除去するために、砂等とともに混練する。その後、不浸透性を確実なものとするために、金属や熱硬化性樹脂を含浸し、最終製品とする。

このように、製品全体に炭化ケイ素層が形成されるため、製品形状に炭素基材を加工したあとで、炭化ケイ素を形成させる処理を施しても、炭化ケイ素に転化した際に発生する残留応力による歪みもほとんどなく、処理後の機械加工を不要とすることができる。また、黒鉛の表面には金属Siとしての残留物は存在せず、使用した樹脂の炭化物、炭化ケイ素、炭化ホウ素の成分の残留物が残るが、容易に取り除くことができるため、特に問題となることはない。また、添加した炭化ホウ素は、炭化ケイ素の共有結合度を高める働きをし、表面の硬度、即ち耐摩耗度を向上させていると推測できる。また、機械加工が、炭化ケイ素化処理前の

炭素基材の段階で、全自动で行なうことができ、摺動面の研磨処理等の精密加工を除く最終機械加工が不要になることで、従来の炭素-炭化ケイ素複合材に比較すると、製造コストの大幅な低減、製造時間の短縮の効果が得られる。

発明を実施するための最良の形態

以下に実施例を示し、本発明を具体的に説明する。

(実施例1)

炭素基材として、密度が 1.77 g/cm^3 、平均細孔半径が $1.5 \mu\text{m}$ 、曲げ強度が 400 kgf/cm^2 の等方性黒鉛（東洋炭素（株）製）を断面積が 0.3 cm^2 の試験用小型メカニカルシールの製品形状に加工した。なお、平均細孔半径は、水銀圧入法による測定値（水銀と試料との接触角 141.3° 、最大圧力 1000 kg/cm^3 のときの累積気孔容積の半分の値）を採用した。ケイ素粉末（和光純薬工業製、平均粒度 $40 \mu\text{m}$ ）と炭化ホウ素粉末（電気化学工業製、品種AFI平均粒度 $5 \mu\text{m}$ ）を重量比で $80:20$ の比率に混合し、分散媒としてポリビニールアルコール8%溶液を加え、混合分散させてスラリーとした。このスラリー中に試験品を浸し、1時間程度常温下で放置後、乾燥機の中で 80°C から 200°C で溶媒を蒸発させ、さらに 10 Torr の窒素ガス雰囲気下、誘導加熱炉において 1800°C まで5時間で昇温し、30分間保持した後、冷却して取り出した。冷却後、表面の残留物を除去した。次に、密度、表面のケイ化率を測定した。摺動面表面のケイ化率は走査電子顕微鏡（日立製S-2400）を用いて、二次電子像を撮影した。次に画像解析装置（カールツァイス社製IBAS）にて2点のSiC/黒鉛(C)の面積比率を求め、これらを平均して面積比率とした。さらに、摺動面部表面の構成元素をESCA (SSX-100 M

odel 206, Surface Science Instruments 製) を使用し、ワイドスキャン測定を行い定性分析を行った。

(比較例 1)

実施例 1 と同質の炭素基材を使用して、ケイ素粉末のみを用いて、実施例 1 と同様にして、ポリビニールアルコール 8 % 溶液を加え、混合分散させてスラリーとした。このスラリー中に試験品を浸し、1 時間程度常温下で放置後、乾燥機の中で 80 °C から 200 °C で溶媒を蒸発させ、さらに 10 Torr の窒素ガス雰囲気下、誘導加熱炉において 1800 °C まで 5 時間で昇温し、30 分間保持した後、冷却して取り出した。冷却後、表面の残留物を除去した。次に、製品の断面を観察した。

図 1 に炭化ホウ素を添加して作製した本発明に係るメカニカルシール部材の断面全体図を示す。図中の白い部分はケイ素部、黒い部分は炭素部を示す。内部にまで均一にケイ化されているのが判る。ケイ化率は 38 %、密度は 2.18 g / cm³ であった。

図 2 にはシリコンのみを使用して炭化ケイ素を形成させたメカニカルシール部材の断面全体図を示す。図中の白い部分はケイ素部、黒い部分は炭素部を示す。図 1 と異なり、内部にまで均等にケイ素が浸透せず、ケイ素化されているところにバラツキがあることが観察できる。

図 3 には、摺動面表面の構成成分の概略比率を示す。この結果によるとケイ化率は 38 % であり、図 1 に示す面積比率とほぼ同等であることがわかる。

(耐摩耗試験)

耐摩耗試験としてケイ化率が 30 %、35 %、55 % の供試体を作製

し、摺動試験を行った。摺動試験は、試験片をステンレス金具に固定し、摺動試験面を鏡面仕上げを行い以下の条件でメカニカルシール材としての耐摩耗試験を行なった。

面圧力 0.196 MPa

平均周速 7000 rpm

流体 水 (80°C)

試験時間 100時間

(試験例 1)

炭素基材として、密度が 1.85 g/cm³、平均細孔半径が 1.0 μ m、曲げ強度が 800 kgf/cm² の等方性黒鉛（東洋炭素（株）製）を実施例 1 同様に断面積が 0.3 cm² の試験用小型メカニカルシールの製品形状に加工した。その後、実施例 1 と同手順でケイ素粉末（和光純薬工業製、平均粒度 40 μ m）と炭化ホウ素粉末（電気化学工業製、品種 AFI 平均粒度 5 μ m）を重量比で 80 : 20 の比率に混合し、分散媒としてポリビニールアルコール 8% 溶液を加え、混合分散させてスラリーとした。このスラリー中に試験品を浸し、1 時間程度常温下で放置後、乾燥機の中で 80°C から 200°C で溶媒を蒸発させ、さらに 10 Torr の窒素ガス雰囲気下、誘導加熱炉において 1800°C まで 5 時間で昇温し、30 分間保持した後、冷却して取り出した。冷却後、表面の残留物を除去した。さらに実施例 1 同様にケイ素化率と密度を測定した。ケイ素比率は 30%、密度は 2.15 g/cm³ であった。

次に不浸透化処理を目的として常温にて試験品を含浸装置に入れて、真空下にてフェノール樹脂を注入し、続けて 20 kg/cm² の圧力で 2 時間加圧した。含浸処理後、乾燥機に入れて常温から 200°C まで昇

温し樹脂を硬化した。

(試験例 2)

炭素基材として、密度が 1.82 g/cm^3 、平均細孔半径が $1.2 \mu\text{m}$ 、曲げ強度が 780 kgf/cm^2 の等方性黒鉛（東洋炭素（株）製）を使用し、実施例 1 と同様の手法にて炭素—炭化ケイ素複合材の試験用小型メカニカルシールを作製した。ケイ素比率は 38%、密度は 2.18 g/cm^3 であった。その後、試験例 2 と同様、フェノール樹脂を含浸し、供試体とした。

(試験例 3)

炭素基材として、密度が 1.70 g/cm^3 、平均細孔半径が $2.0 \mu\text{m}$ 、曲げ強度が 370 kgf/cm^2 の等方性黒鉛（東洋炭素（株）製）を使用し、試験例 1 と同様の手法にて炭素—炭化ケイ素複合材の試験用小型メカニカルシールを作製した。ケイ素比率は 55%、密度は 2.40 g/cm^3 であった。その後、アンチモン（Sb）を含浸し、供試体とした。

図 4 に耐摩耗試験の結果を示す。

図 3 の結果から、内部まで略均等に炭素—炭化ケイ素複合材がケイ化率 30 ~ 55.5% の比率で形成された本発明に係る炭素—炭化ケイ素複合材は十分にメカニカルシール部材としての機能を備えていると言える。

産業上の利用可能性

本発明にかかるメカニカルシール部材によると、低速回転、高圧力下

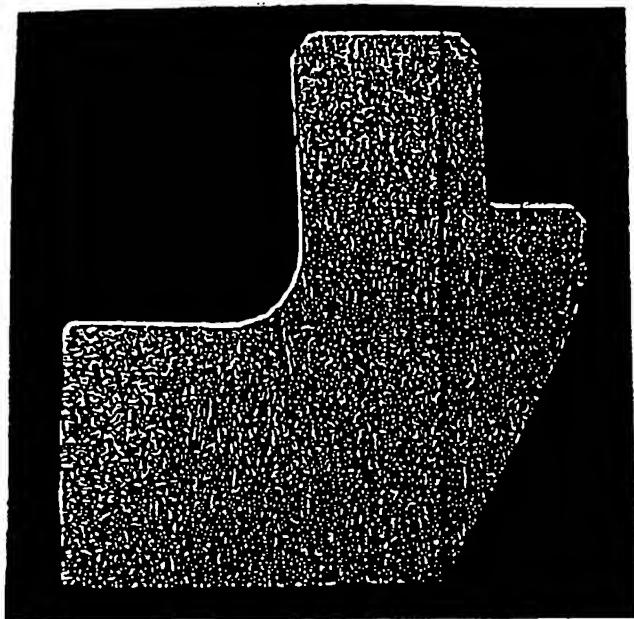
の条件でも、これまで使用されていた黒鉛製のメカニカルシール材以上の摺動封止効果が得られ、あわせて、予め基材の段階で最終製品寸法への機械加工が可能となることから、製造コストの低減が可能となり、大量生産した場合は、従来の黒鉛製のメカニカルシール材と比較してもそれほど差がなくなり、非常に経済的にかつ容易に小型汎用形ポンプ用メカニカルシール部材が提供できるようになる。

請求の範囲

1. 炭素基材のメカニカルシール部材であって、製品形状に加工された炭素基材の全部の表面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材になっており、その表面には被覆膜が形成されており、前記被覆膜は炭化ケイ素と炭化ホウ素を主成分とする薄膜であるメカニカルシール部材。
2. 中心軸に平行な断面が $7 \times 7 \text{ mm}$ 以下の小型であって、表面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材が深さ方向にほぼ均一に形成され、前記断面のほぼ中心部まで炭素-炭化ケイ素複合材であるメカニカルシール部材。
3. 前記炭素-炭化ケイ素複合材の表面のケイ化率が面積比率で 30 ~ 55 % である請求項 1 又は 2 記載のメカニカルシール部材。
4. 前記炭素基材密度が 1.7 g/cm^3 以上であり、ケイ化後の密度が $2.0 \sim 2.5 \text{ g/cm}^3$ である請求項 1 又は 2 記載のメカニカルシール部材。
5. 前記炭化ケイ素と炭化ホウ素を主成分とする被覆膜の厚みが $3 \sim 20 \mu \text{m}$ の範囲である請求項 1 又は 2 記載のメカニカルシール部材。
6. 前記炭素-炭化ケイ素複合材の気孔に金属又は樹脂を含浸させる請求項 1 又は 2 記載のメカニカルシール部材。
7. 製品形状に加工され、平均細孔半径が $1.0 \mu \text{m}$ 以上である炭素材の全面に、炭化ホウ素粉末とケイ素粉末を混合分散したスラリーを塗布し、焼成することにより、前記製品形状の表面の全面から内部に向かって炭素-炭化ケイ素複合材が形成されてなるメカニカルシール部材。
8. 製品形状に加工された前記炭素材は、中空円筒状または円筒状の炭素材を機械加工で切り出して製作される請求項 7 記載のメカニカルシール部材。

9. 前記炭素-炭化ケイ素複合材の気孔に金属又は樹脂を含浸させて
なる請求項7記載のメカニカルシール部材。

第 1 図



小型メカニカルシール用

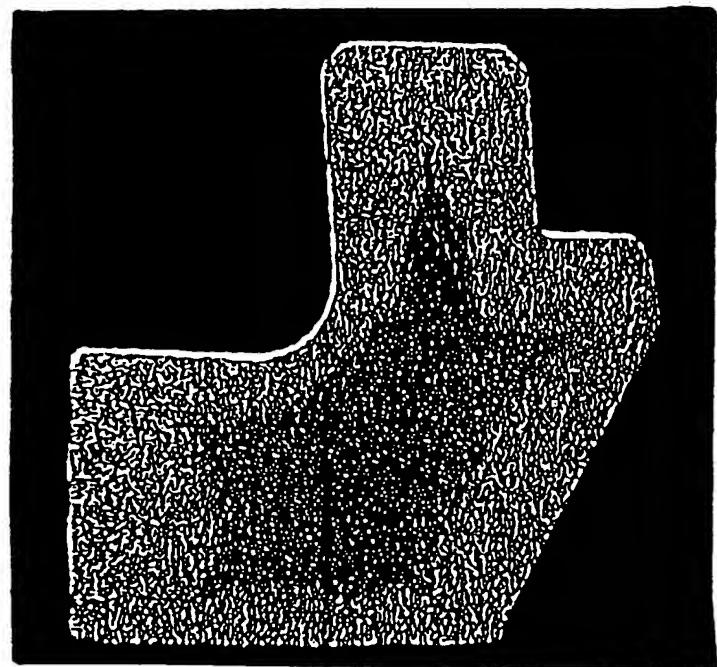
断面部

白色斑点: SiC

黒色斑点: C

×20倍

第 2 図



第 3 図

	炭素	ケイ素化合物	その他
重量%	54	38	7.6

第 4 図

	基材嵩 密度 g/cm ³	基材細孔 半径 μm	面積比率		ケイ化後 嵩密度 g/cm ³	100h試験後の摩耗量 μm	
			SIC	C		相手材	供試材
試験例 1	1.85	1.0	30	70	2.05	2	1
試験例 2	1.82	1.2	35	65	2.18	1	1
試験例 3	1.70	2.0	55	45	2.40	5	2

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/04965

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ F16J15/34

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ F16J15/34-15/38, C04B41/89

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1999
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1999 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 9-132478, A (Eagle Industrials Co., Ltd.), 20 May, 1998 (20.05.98), Examples (Family: none)	1-9
A	JP, 8-109083, A (Toyo Tanso K.K.), 30 April, 1996 (30.04.96), Examples (Family: none)	1-9
E	JP, 10-251063, A (Tanken Seal Seiko K.K.), 22 September, 1998 (22.09.98), Par. No. [0014], & EP, A2, 86459	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
26 November, 1999 (26.11.99)

Date of mailing of the international search report
07 December, 1999 (07.12.99)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C1' F16J15/34

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C1' F16J15/34-15/38, C04B41/89

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-1999年
 日本国登録実用新案公報 1994-1999年
 日本国実用新案登録公報 1996-1999年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 9-132478, A (イーグル工業株式会社), 20. 5 月, 1998 (20. 05. 98), 【実施例】 (ファミリーなし)	1-9
A	JP, 8-109083, A (東洋炭素株式会社), 30. 4月. 1996 (30. 04. 96), 【実施例】 (ファミリーなし)	1-9
E	JP, 10-251063, A (株式会社タンケンシールセーラ ウ), 22. 9月, 1998 (22. 09. 98), 【0014】 &EP, A2, 86459	1-9

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す
もの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日
以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行
日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する
文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって
て出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理
論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで發明
の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以
上の文献との、当業者にとって自明である組合せに
よって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

26. 11. 99

国際調査報告の発送日

07.12.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小谷 一郎

3W 8206

印

電話番号 03-3581-1101 内線 3367